(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2002-319491 (P2002-319491A)

(43)公開日 平成14年10月31日(2002.10.31)

(51) Int.Cl.7	識別記号	F I	テーマコート*(参考)
H05B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3K007
C 0 8 F 212/32		C 0 8 F 212/32	4 J 1 O O
C 0 9 K 11/06	660	C 0 9 K 11/06	660
	690		690
// (C08F 212/32		C 0 8 F 226: 06	
		審査請求 未請求 請求項の数10	OL (全 106 頁) 最終頁に続く

(71)出願人 000005201 特願2001-236419(P2001-236419) (21)出顯番号 富士写真フイルム株式会社 神奈川県南足柄市中沼210番地 平成13年8月3日(2001.8.3) (22)出願日 (72)発明者 岡田 久 (31)優先権主張番号 特願2000-254171 (P2000-254171) 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 フイルム株式会社内 (32)優先日 平成12年8月24日(2000.8.24) 日本 (JP) (72)発明者 伊勢 俊大 (33)優先権主張国 (31)優先権主張番号 特願2001-38718(P2001-38718) 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 フイルム株式会社内 平成13年2月15日(2001.2.15) (32)優先日 (33)優先権主張国 日本(JP) (74)代理人 100105647 弁理士 小栗 昌平 (外4名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光素子及び新規重合体子

(57)【要約】

【課題】高輝度、高効率発光可能で耐久性に優れた発光 素子を提供する。

【解決手段】基板上に設けた一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とりん光発光性化合物を含有することを特徴とする発光素子。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に設けた一対の電極間に少なくと も発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子におい て、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2 つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とりん光発光性 化合物とを含有することを特徴とする発光素子。

【請求項2】 基板上に設けた一対の電極間に少なくと も発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子におい て、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2 つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物と有機金属錯体 10 とを含有することを特徴とする発光素子。

【請求項3】 基板上に設けた一対の電極間に少なくと も発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子におい て、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2 つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とオルトメタル 化錯体とを含有することを特徴とする請求項2に記載の 発光素子。

【請求項4】該ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格 を有する化合物が下記一般式 (I) で表される化合物で あることを特徴とする請求項1~3のいずれかに記載の 20 発光素子。

【化1】

(式中、Rは水素原子または置換基を表す。Xは-O -、-S-、=N-または=N-R*(R*は水素原子、 脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表 す。)を表す。QはNおよびXと結合してヘテロ環を形 成するのに必要な原子群を表す。)

【請求項5】 下記一般式(D)で表される繰り返し単 位を少なくとも1つ含む重合体。

【化2】

$$(R^{D1})^{nD}$$

$$(R^{D2})^{nD}$$

(式中、Ar^Dはアリーレン基または二価のヘテロ環基 を表す。R^{D1}、R^{D2}は水素原子または置換基を表す。n "は0~3の整数を表し、m"は0~5の整数を表す。) 50

【請求項6】 請求項1~3におけるヘテロ原子を2つ 以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

(D) で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重 合体であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに 記載の発光素子。

【化3】

一般式(D)

$$(R^{D1})^{nD}$$

$$(R^{D2})^{mD}$$

(式中、Ar[®]はアリーレン基または二価のヘテロ環基 を表す。R^{D1}、R^{D2}は水素原子または置換基を表す。n [□]は0~3の整数を表し、m[□]は0~5の整数を表す。) 【請求項7】 下記一般式 (E) で表される繰り返し単 位を少なくとも1つ含む重合体。

【化4】

30

一般式(E)

(式中、Ar 『はアリーレン基または二価のヘテロ環基 を表す。R^{®1}、R^{®2}は水素原子または置換基を表す。n 『およびm』は0~5の整数を表す。)

【請求項8】 請求項1~3におけるヘテロ原子を2つ 以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

(E) で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重 合体であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに 記載の発光素子。

【化5】

一般式(E)

$$(R^{E1})^{n^{E}}$$

$$(R^{E2})^{m^{E}}$$

(式中、Ar®はアリーレン基または二価のヘテロ環基 を表す。R^{E1}、R^{E2}は水素原子または置換基を表す。n 『およびm』は0~5の整数を表す。)

【請求項9】 請求項3におけるオルトメタル化錯体が イリジウム錯体であることを特徴とする請求項4、6お よび8に記載の発光素子。

【請求項10】 少なくとも発光層を含む有機化合物層 が高分子化合物を含有することを特徴とする請求項1~ 4、6、8および9のいずれかに記載の発光素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、発光素子材料およ び発光素子に関するものであり、特に高輝度で発光効率 が高く、耐久性に優れる発光素子に関するものである。

[0002]

【従来の技術】今日、種々の発光素子に関する研究開発 が活発であり、中でも有機電界発光 (EL) 素子は、低 電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な発 光素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸 30 着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている (アプライド フィジックス レターズ,51巻,91 3頁、1987年)。この文献に記載された発光素子は トリス (8-ヒドロキシキノリナト) アルミニウム錯体 (A1q)を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料 (アミン化合物)と積層させることにより、従来の単層 型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

【0003】近年、有機EL素子をカラーディスプレイ へと適用することが活発に検討されているが、高性能力 ラーディスプレイを開発する為には、青・緑・赤、それ 40 ぞれの発光素子の特性を向上する必要がある。発光素子 特性向上の手段として、アプライド フィジックス レ ターズ, 75巻, 4頁, (1999年) に記載のイリジ ウム錯体からの発光を利用した緑色発光素子が報告され ている。本素子は外部量子効率8%を達しており、従来 素子の限界といわれていた外部量子効率5%を凌駕して いるが、耐久性に問題があり、その改良が望まれてい

【0004】一方、有機発光素子において高輝度発光を 実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層し 50

ている素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面 積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。 しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光 輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣って おり、高輝度、高効率発光化が大きな課題となってい た。

[0005]

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記のような 実情に鑑みてなされたものであり、高輝度、高効率発光 10 可能で耐久性に優れた発光素子を提供することにある。

[0006]

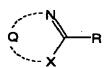
【課題を解決するための手段】この課題は下記によって 達成された。

- (1) 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層 を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有 機化合物層の少なくとも 1層にヘテロ原子を2つ以上含 むヘテロ環骨格を有する化合物とりん光発光性化合物と を含有することを特徴とする発光素子。
- (2) 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層 20 を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有 機化合物層の少なくとも 1 層にヘテロ原子を 2 つ以上含 むヘテロ環骨格を有する化合物と有機金属錯体とを含有 することを特徴とする発光素子。
 - (3) 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層 を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有 機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含 むヘテロ環骨格を有する化合物とオルトメタル化錯体と を含有することを特徴とする(2)に記載の発光素子。
 - (4) 該ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有す る化合物が下記一般式 (I) で表される化合物であるこ とを特徴とする(1)~(3)のいずれかに記載の発光 素子。

[0007]

【化6】

一般式(I)



【0008】(式中、Rは水素原子または置換基を表 $f \circ X d - O - \cdot - S - \cdot = N - f \circ d = N - R \circ (R \circ e \circ e)$ は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテ ロ環基を表す。)を表す。QはNおよびXと結合してへ テロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

(5) 下記一般式(D) で表される繰り返し単位を少な くとも1つ含む重合体。

[0009]

【化7】

一般式(D)

$$(\mathbf{R}^{D1})^{\mathbf{n}^{D}}$$

$$(\mathbf{R}^{D2})^{\mathbf{n}^{D}}$$

【0010】 (式中、 Ar^{D} はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 R^{D1} 、 R^{D2} は水素原子または置換基を表す。 n^{D} は0~3の整数を表し、 m^{D} は0~5の整数を表す。)

(6) (1) \sim (3) におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式 (D) で表される繰り返し単位を少なくとも 1 つ合む重合体であることを特徴とする (1) \sim (3) のいずれかに記載の発光素子。

[0011]

【化8】

一般式(D)

$$(\mathbf{R}^{D1})^{\mathbf{n}^{D}}$$

$$(\mathbf{R}^{D2})^{\mathbf{n}^{D}}$$

【0012】 (式中、 Ar^D はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 R^{D1} 、 R^{D2} は水素原子または置換基を表す。 n^D は0~3の整数を表し、 m^D は0~5の整数を表す。)

(7)下記一般式 (E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

[0013]

【化9】

一般式(E)

$$(R^{E1})^{n^E}$$

$$(R^{E2})^{m^E}$$

【0014】 (式中、 Ar^{E} はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 R^{E1} 、 R^{E2} は水素原子または置換基を表す。 n^{E} および m^{E} は0~5の整数を表す。)

(8) (1) \sim (3) におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする(1) \sim (3) のいずれかに記載の発光素子。

20 [0015]

10

30

【化10】

一般式(E)

【0016】(式中、 Ar^{E} はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 R^{E1} 、 R^{E2} は水素原子または置換基を表す。 n^{E} および m^{E} は0~5の整数を表す。)

(9) (3) におけるオルトメタル化錯体がイリジウム 錯体であることを特徴とする(4)、(6) または

(8)に記載の発光素子。

(10)有機少なくとも発光層を含む有機化合物層が高 40 分子化合物を含有することを特徴とする(1)~

(4)、(6)、(8) および(9) のいずれかに記載 の発光素子。

[0017]

【発明の実施の形態】本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物は、炭素原子、水素原子以外の原子を、環を形成する基本骨格内に2つ以上有する化合物であり、単環または縮環であっても良い。ヘテロ環骨格としては、好ましくはN、O、S原子から選ばれる原子を2つ以上有するものであり、更に好50 ましくはヘテロ原子のうち少なくとも一つがN原子であ

R

る芳香族ヘテロ環であり、特に好ましくはN原子を骨格 内に2つ以上有する芳香族へテロ環である。また、ヘテ 口原子は縮合位置にあっても、非縮合位置にあってもよ い。ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格としては、 例えばピラゾール、イミダゾール、ピラジン、ピリミジ ン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジ ン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジ ン、フェナントロリン、ピロロイミダゾール、ピロロト リアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾ ール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、イミ 10 ダゾイミダゾール、イミダゾピリダジン、イミダゾピリ ジン、イミダゾピラジン、トリアゾロピリジン、ベンゾ イミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾー ル、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチ アゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、ト リアジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリダジ ン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミ ダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、 ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾ ール、トリアジンであり、より好ましくはイミダゾピリ ジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミダゾール、ナフト イミダゾール、トリアジンであり、更に好ましくはイミ ダゾピリジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾー ル、トリアジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジ ン、トリアジンである。

【0018】ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物として好ましくは下記一般式(I)で表される化合物である。

【0019】 【化11】

- 般式 (I)

【0020】式中、Rは水素原子または置換基を表す。 Xは0、S、NまたはN-R*(R*は水素原子、脂肪族 炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)を表す。QはNおよびXと結合してヘテロ環を形成するの に必要な原子群を表す。また、RとX、RとQは可能な場合には結合して環を形成しても良い。Rで表される置 換基として、例えばアルキル基(好ましくは炭素数 $1\sim20$ 、特に好ましくは炭素数 $1\sim20$ 、カタロペン カル、1<0 などが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数 1<0 などが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数 1<0 などが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数 1<0 などが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数 1<0 などが挙げられる。)、アルフェンル、シクロペン おりてのスキシルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルをどが挙げられる。)、アシルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルをどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルをどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルをどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルをどが挙げられる。)、アシルアミノをどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルをどが挙げられる。)、アシルアミノをとは炭素数 1<0 などが挙げられる。)、アルコキシカルボニルをどが挙げられる。)、アシルアミノをに好ましくは炭素数 1<0 などが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アルコキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが挙げられる。)、アシルアミノをとが変がが変ががある。)、アシルアミノをとが変がが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変がが変がが変がが表する。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変がが変ががある。)、アシルアミノをとが変がが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。)、アシルアミノをとが変ががある。

えばビニル、アリル、2-プテニル、3-ペンテニルな どが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数 2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好まし くは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好まし くは炭素数 $6\sim30$ 、より好ましくは炭素数 $6\sim20$ 、 特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニ ル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられ る。)、アミノ基(好ましくは炭素数0~30、より好 ましくは炭素数0~24、特に好ましくは炭素数0~2 0であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミ ノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルア ミノ、ジトリルアミノ、ジナフチルアミノなどが挙げら れ、特に好ましくはジフェニルアミノ、ジトリルアミ ノ、ジナフチルアミノ基である。)、アルコキシ基(好 ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~2 0、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメト キシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシな どが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭 20 素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好 ましくは炭素数 $6\sim12$ であり、例えばフェノキシ、1-ナフトキシ、2-ナフトキシなどが挙げられる。)、 ヘテロ環オキシ基 (好ましくは炭素数2~20、より好 ましくは炭素数3~16、特に好ましくは炭素数4~1 2であり、例えばピリジノオキシ、ピリミジノオキシ、 ピリダジノオキシ、ベンズイミダゾリルオキシなどが挙 げられる。)、シリルオキシ基(好ましくは炭素数3~ 40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは 炭素数3~20であり、例えばトリメチルシリルオキ 30 シ、t-ブチルジメチルシリルオキシ、トリフェニルシ リルオキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましく は炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特 に好ましくは炭素数2~12であり、例えばアセチル、 ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられ る。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2 ~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましく は炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、 エトキシカルポニルなどが挙げられる。)、アリールオ キシカルボニル基 (好ましくは炭素数7~30、より好 ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~1 2であり、例えばフェノキシカルボニルなどが挙げられ る。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~30、 より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数 2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシ などが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭 素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好 ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミ ノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキ シカルポニルアミノ基 (好ましくは炭素数2~30、よ

~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが 挙げられる。)、アリールオキシカルポニルアミノ基 (好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7 ~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えば フェノキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、ス ルホニルアミノ基 (好ましくは炭素数1~30、より好 ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~1 2であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンス ルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル 基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数 10 $0 \sim 20$ 、特に好ましくは炭素数 $0 \sim 12$ であり、例え ばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルス ルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられ る。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~30、 より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数 1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモ イル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルな どが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素 数 $1 \sim 30$ 、より好ましくは炭素数 $1 \sim 20$ 、特に好ま しくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチ ルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好まし くは炭素数 $6\sim30$ 、より好ましくは炭素数 $6\sim20$ 、 特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル チオなどが挙げられる。)、ヘテロ環チオ基(好ましく は炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特 に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジルチ オ、2-ベンズイミダゾリルチオ、2-ベンズオキサゾ リルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられ る。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、よ り好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1 ~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられ る。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、 より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数 1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼン スルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ま しくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~2 0、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレ イド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げら れる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~3 0、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭 40 素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フ ェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ 基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、 塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ 基、カルポキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、ス ルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基 (好 ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~1 2であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素 原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリ

ホリノ、ペンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベ ンゾチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルなどが挙げ られる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、よ り好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3 ~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニル シリルなどが挙げられる。) などが挙げられる。これら の置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以 上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な 場合には連結して環を形成してもよい。

【0021】Rで表される置換基として好ましくは、脂 肪族炭化水素基、アリール基およびヘテロ環基であり、 より好ましくはアリール基、芳香族へテロ環基であり、 更に好ましくはアリール基、5または6員の芳香族ヘテ ロ環基であり、特に好ましくはアリール基、N、S、O 原子の少なくとも一つを含む5または6員の芳香族ヘテ ロ環基であり、最も好ましくはアリール基である。

【0022】XはO、S、NまたはN-R°を表す。R° は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテ 口環基を表す。R^{*}で表される脂肪族炭化水素基は直 鎖、分岐または環状のアルキル基 (好ましくは炭素数1 ~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましく は炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、iso ープロピル、tertーブチル、nーオクチル、nーデ シル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペン チル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル 基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数 2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えば ビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙 げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~2 0、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭 素数2~8であり、例えばプロパルギル、3~ペンチニ ル等が挙げられる。) であり、より好ましくはアルキル 基である。

30

【0023】R°で表されるアリール基は、単環または 縮環のアリール基であり、好ましくは炭素数6~30、 より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数 6~12であり、例えばフェニル、2-メチルフェニ ル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メ トキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペ ンタフルオロフェニル、1ーナフチル、2ーナフチル等 が挙げられる。R°で表されるヘテロ環基は、単環また は縮環のヘテロ環基 (好ましくは炭素数1~20、より 好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~ 10のヘテロ環基)であり、好ましくは窒素原子、酸素 原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳 香族ヘテロ環基である。R *で表されるヘテロ環基の具 体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラ ジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラ ン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、 ジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モル 50 ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、ト

リアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアリン、キノリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、より好ましくはキノリンである。

【0024】R°で表される脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては一般式(I)におけるRで表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。R°として好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳20香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基である。

【0025】Xとして好ましくは0、N、N-R°であり、より好ましくはN、N-R°であり、特に好ましくはN、N-Ar(Arはアリール基(好ましくは炭素数 $6\sim30$ 、より好ましくは炭素数 $6\sim20$ 、更に好ましくは炭素数 $6\sim12$ のアリール基)、芳香族へテロ環基(好ましくは炭素数 $1\sim2$ 、更に好ましくは炭素数 $2\sim10$ の芳香族へテロ環基)であり、好ましくはアリール基である。)である。

【0026】QはNおよびXと結合してヘテロ環を形成 するに必要な原子群をあらわす。Qで形成されるヘテロ 環として好ましくは芳香族へテロ環であり、より好まし くは5~8員の芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは 5または6貝環の芳香族へテロ環である。Qで形成され るヘテロ環の具体例としては、イミダゾール環、オキサ ゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾー ル環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾ ール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チ 40 アトリアゾール環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラ ジン環、トリアジン環、テトラジン環等が挙げられ、好 ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール 環、トリアジン環であり、より好ましくはイミダゾール 環、オキサゾール環、トリアジン環であり、更に好まし くはイミダゾール環、トリアジン環である。Qで形成さ れるヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、 また、置換基を有していてもよい。置換基としては例え ばRで表される基として挙げたものが適用できる。Qの 置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、ア 50

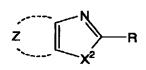
ルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アリール基、アリール基、アリール基、アリール基、アリール基、アリール基、アリール基、アリール基、アリール基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。一般式(I)で表される化合物のうち、好ましくは下記一般式(II)またはトリアジン化合物(後述)である。

[0027]

【化12】

30

一般式(II)



【0028】式中、Rは一般式(I)におけるそれらと 同義であり、また好ましい範囲も同様である。X2は-O-、-S-または=N-R*を表す。R*は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も 同様である。X²として好ましくは-O-、=N-R^aで あり、より好ましくは=N-R*であり、特に好ましく は=N-Ar (Arはアリール基 (好ましくは炭素数6 ~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましく は炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1 ~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ 環基)であり、好ましくはアリール基である。)であ る。乙は芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。乙 で形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族ヘテ ロ環のいずれでもよく、具体例としては、例えばベンゼ ン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダ ジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフ ェン環、セレノフェン環、テルロフェン環、イミダゾー ル環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール 環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾー ル環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン 環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、 より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環で あり、更に好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、 特に好ましくはピリジン環である。Zで形成される芳香 族環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換 基を有していてもよい。置換基としては例えば一般式

(I) におけるRで表される基として挙げたものが適用 でき、2で形成される芳香族環の置換基として好ましく はアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール 基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシ ル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボ ニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシ カルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ 基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモ イル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル 基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より 10 好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、ア*

一般式 (A-II)

$$Z$$
 X^2
 L
 R_2

【0031】一般式 (A-II) におけるX²は一般式 (I I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同 様である。Zは一般式(II)におけるそれと同義であ り、また好ましい範囲も同様である。R₁およびR₂は、 同一でも異なっていてもよく、それぞれ水素原子、脂肪 族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。ま た、可能な場合はR₁とR₂、R₁とL、R₂とL、X²と Lはそれぞれ互いに連結して環を形成しても良い。

【0032】R₁およびR₂で表される脂肪族炭化水素基 は、直鎖、分岐または環状のアルキル基 (好ましくは炭 素数 $1 \sim 30$ 、より好ましくは炭素数 $1 \sim 20$ 、更に好 ましくは炭素数1~12であり、例えば、メチル、エチ ル、iso-プロピル、n-ブチル、tert-ブチ ル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シ クロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが 挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~ 30、より好ましくは炭素数2~20、更に好ましくは 炭素数2~12であり、例えば、ビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。)、アルキ ニル基 (好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭 素数2~20、更に好ましくは炭素数2~12であり、 例えばプロパルギル、3ーペンチニルなどが挙げられ る。) であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基で 40 あり、より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル 基、ブチル基、アリル基、R₁、R₂がLと結合して縮合 環(例えばユロリジン環、ピロール環、アゼピン環等) を形成したものである。

【0033】R」およびR2で表されるアリール基は、単 環または縮環のアリール基であり、好ましくは炭素数6 ~30の単環~4員環のアリール基(例えばフェニル、 ナフチル、アントリル、フェナントリル、ピレニル等が 挙げられる。)であり、より好ましくは炭素数6~20

*ルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ 基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、ア リール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族へ テロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール 基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

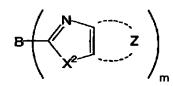
【0029】一般式(II)で表される化合物のうち、更 に好ましくは下記一般式 (A-II) または (B-II) で 表される化合物である。

[0030]

【化13】

20

一般式 (B-II)



り、更に好ましくは炭素数6~12のフェニル基または 炭素数10~16のナフチル基である。

【0034】R₁およびR₂で表されるヘテロ環基は、窒 素原子、酸素原子、硫黄原子またはセレン原子を少なく とも一つ含む3ないし10員環の飽和もしくは不飽和の ヘテロ環基であり、これらは単環であっても良いし、更 に他の環と縮合環を形成していても良い。ヘテロ環基と して好ましくは、窒素原子、酸素原子、硫黄原子または セレン原子を少なくとも一つ含む3ないし10員環の芳 香族ヘテロ環基であり、より好ましくは5または6員環 の芳香族へテロ環基であり、更に好ましくは、窒素原子 または硫黄原子を含む5または6員環の芳香族ヘテロ環 基である。ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジ ン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェ ン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、 ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミ ジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダ ゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾ ール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾー ル、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジ ン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジ ン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テト ラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、 ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザイン デン等が挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、チオ フェン、トリアゾール、オキサゾール、ピリジン、トリ アジン、キノリンであり、より好ましくはチオフェン、 ピリジン、トリアジン、キノリンであり、更に好ましく はチオフェンである。

【0035】R1、R2で表される脂肪族炭化水素基、ア リール基およびヘテロ環基は置換基を有していてもよ く、置換基としては、一般式(I)のRで表される基と のフェニル基または炭素数10~24のナフチル基であ 50 して挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様で

ある。

【0036】R₁、R₂として好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族へテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族へテロ環基であり、更に好ましくはアリール基である。

【0037】Lは連結基を表す。Lで表される連結基として好ましくは、単結合、C、N、O、S 、S e、T e、S i、G e などで形成される連結基であり、より好ましくは単結合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価のヘテロ環(好ましくは芳香族 10 ヘテロ環であり、より好ましくはアゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。)およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、 特に好ましくはフェニレン、チェニレンおよびNとこれらの組み合わせから成る基であり、最も好ましくはフェニレンである。また、可能な場合にはL はR 1、R 2 と連結して環を形成しても良い。

【0038】Lで表される連結基は置換基を有していてもよく、置換基としては例えばRで表される基として挙げたものが適用できる。Lの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン

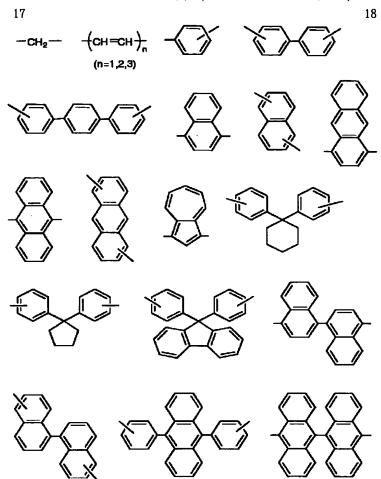
原子、シアノ基、芳香族へテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族へテロ環基である。

【0039】一般式 (B-II) におけるX²は一般式 (I I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同 様である。Zは一般式(II)におけるそれと同義であ り、また好ましい範囲も同様である。Bは連結基を表 す。Bで表される連結基として好ましくは、C、N、 O、S、Si、Geなどで形成される連結基である。B として好ましくは炭素原子、アルキレン、アルケニレ ン、アルキニレン、アリーレン、多価の芳香環(炭素原 子のみからなる芳香環であってもヘテロ環であってもよ く、ヘテロ環として好ましくアゾール、チオフェン、フ ラン環から形成される芳香族へテロ環などである。) お よびNとこれらの組合わせから成る基であり、更に好ま しくはアリーレン、三価の芳香環およびNとこれらの組 み合わせから成る基であり、更に好ましくは三価の芳香 環およびNとこれらの組合わせから成る基であり、特に 好ましくは、1,3,5-ベンゼントリイル基である。 【0040】一般式 (B-II) において、mは2以上 の整数を表し、好ましくは2ないし8、より好ましくは 2ないし6、更に好ましくは2ないし4であり、特に好 ましくは2または3であり、最も好ましくは3である。 【0041】B(Lを含む)で表される連結基の具体例

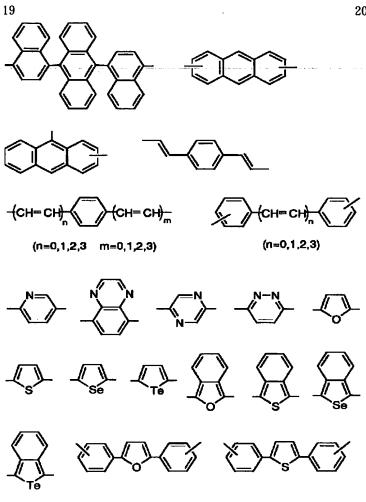
としては、単結合の他、例えば以下のものが挙げられ

[0042]

【化14】

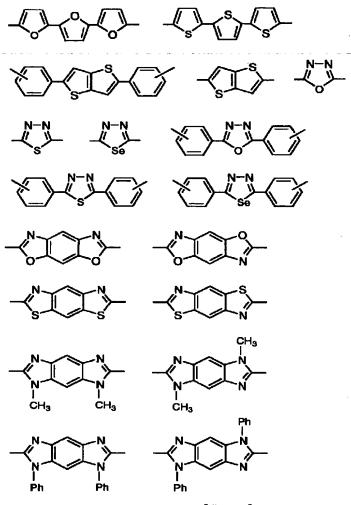


[0043] [化15]



[0044]

【化16】



[0045]

【化17】

【0046】 【化18】

30

【0047】 【化19】

40

[0048]

【化20】

【0049】一般式 (A-II) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 (A-III) で表される化合物である。

【0050】 【化21】

【0051】式中、Zは一般式(II)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R_1 、 R_2 は一般式(A-II)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R^* は一般式(I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。A r^* はアリーレンまたは二価の芳香族へテロ環基を表し、これらの基は一般式(A-II)におけるLで説明した好ましいアリーレン、二価の芳香族へテロ環基と同義である。A r^* で表されるアリーレンまたは二価の芳香

族へテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては例えばRで表される基として挙げたものが適用できる。Ar *の置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ40 基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【0052】一般式 (A-II) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 (A-IV) または (A-V) で表される化合物である。

[0053]

【化22】

一般式 (A-IV)

$$(R_{B4})_{MB4}$$
 N N R_2

一般式(A-V)

$$(R_{ab})_{mas}$$
 N $Ar^{a}-N < R_{1}$ R_{2}

【0054】式中、R₁、R₂は一般式 (A-II) におけ るそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R^aは一般式(I)におけるそれと同義であり、また好 ましい範囲も同様である。Ar*は一般式(A-III)に おけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様であ る。Ra4およびRa5は、それぞれ置換基を表し、置換基 としては一般式(I)におけるRで表される基として挙 げたものが適用でき、Ras、Rasとして好ましくは、ア ルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、 アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン 原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好 ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ア リール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン 原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好まし くはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であ る。また、可能な場合には置換基同士が連結して環を形 成していても良い。ma4は0ないし3の整数を表し、好 ましくは0ないし2、より好ましくは0または1、更に 好ましくは0である。masは0ないし4の整数を表し、 好ましくは0ないし3、より好ましくは0ないし2、更 30 に好ましくは0または1、特に好ましくは0である。

【0055】一般式 (A-II) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 (A-VI) または一般式 (A-VII) で表される化合物である。

[0056]

【化23】

一般式 (A-VI)

$$(R_{a7})_{ma7}$$
 $(R'_{a7})_{ma7}$
 $(R'_{a7})_{ma7}$
 $(R'_{a7})_{ma7}$
 $(R_{a7})_{ma7}$
 $(R_{a7})_{ma7}$

【0057】式中、 R_1 、 R_2 はそれぞれ一般式 (A-I I) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R° は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{\circ \circ}$ は一般式

(A-IV) におけるRa4と同義であり、また好ましい範 囲も同様である。Ra7は一般式(A-V)におけるRa5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。masは 一般式(A-IV)におけるma4と同義であり、また好ま しい範囲も同様である。marは一般式(A-V)におけ るmasと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R'a6およびR'a7は、それぞれ置換基を表し、置換基と しては一般式(I)におけるRで表される基として挙げ たものが適用でき、R'asおよびR'arとして好ましく 10 は、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリー ル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハ ロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、 より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル 基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハ ロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に 好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基 である。また、可能な場合には置換基同士が連結して環 を形成していても良い。 m'asおよびm'a7は0ないし 4の整数を表し、好ましくは0ないし3、より好ましく は0ないし2、更に好ましくは0または1、特に好まし くは0である。 一般式 (A-II) で表される化合物の

【0058】一般式 (B-II) で表される化合物のうち、より好ましくは一般式 (B-III) で表される化合物である。

うち、特に好ましくは一般式 (A-VI) で表される化合

[0059]

【化24】

物である。

$$-$$
般式(B $-$ III)
B $\begin{pmatrix} N \\ X^2 \end{pmatrix}_{\Gamma}$
Z_{b3}

【0060】式中、B、X2およびmは、それぞれ一般 式(B-II)におけるそれらと同義であり、また好まし い範囲も同様である。Zb3は芳香族ヘテロ環を形成する に必要な原子群を表す。 Zb3で形成される芳香族ヘテロ 環として好ましくは5または6員の芳香族へテロ環であ 40 り、より好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ 環であり、更に好ましくは6員の含窒素芳香族へテロ環 である。 Z ьз で形成される芳香族へテロ環の具体例とし ては、例えばフラン、チオフェン、ピラン、ピロール、 イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリ ミジン、ピリダジン、トリアジン、チアゾール、オキサ ゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジア ゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾー ル、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジ ン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好 50 ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピ

リジンである。Zb3で形成される芳香族ヘテロ環は更に 他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有して もよい。置換基としては一般式(I)のRで表される基 として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様 である。

【0061】一般式 (B-II) で表される化合物のう ち、更に好ましくは一般式 (B-IV) で表される化合物 である。

[0062]

【化25】

【0063】式中、B、X²およびmは、それぞれ一般 式 (B-II) におけると同義であり、また好ましい範囲 も同様である。Zb4は含窒素ヘテロ環を形成するに必要 な原子群を表す。 Zыで形成される含窒素芳香族へテロ 20 環として好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ 環であり、より好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環 である。Zb4で形成される含窒素芳香族ヘテロ環の具体 例としては、例えばピロール、イミダゾール、ピラゾー ル、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、ト リアジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾー ル、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾ ール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなど が挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジ ン、ビリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラ 30 ち、更に好ましくは一般式 (B-VII) で表される化合 ジンであり、更に好ましくはピリジンである。乙ょで形 成される含窒素芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を 形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基と しては一般式(I)のRで表される基として挙げたもの が適用でき、また好ましい範囲も同様である。

【0064】一般式(B-II)で表される化合物のう ち、より好ましくは一般式 (B-V) で表される化合物 である。

[0065]

【化26】

【0066】式中、B、X2およびmは、それぞれ一般 式(B-II)におけるそれらと同義であり、また好まし い範囲も同様である。 Zьыは 6 貝の含窒素芳香族ヘテロ 環を形成するに必要な原子群を表す。 乙ょで形成される 50

6 員の含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えば ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリア ジンなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、 ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジ ン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。 Z_{b5}で形成される6員の含窒素芳香族へテロ環は更に他 の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有しても よい。置換基としては一般式(I)のRで表される基と して挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様で

【0067】一般式 (B-II) で表される化合物のう ち、更に好ましくは一般式 (B-VI) で表される化合 物である。

[0068]

【化27】

$$B\left(\begin{array}{c} N \\ X^2 \end{array}\right)_{n} Z_{b6}$$

【0069】式中、BおよびX2は、それぞれ一般式

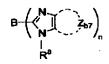
(B-II) におけるそれらと同義であり、また好ましい **範囲も同様である。 Z ь 6 は一般式 (B-V) における Z** ьsと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 nは 2ないし8の整数を表し、好ましくは2ないし6、より 好ましくは2ないし4であり、更に好ましくは2または 3であり、特に好ましくは3である。

【0070】一般式 (B-II) で表される化合物のう 物である。

[0071]

【化28】

一般式 (B-VI)



【0072】式中、Bは一般式 (B-II) におけるそれ 40 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Z ы は 一般式(B-V)におけるZb5と同義であり、また好ま しい範囲も同様である。nは一般式(B-VI)におけ るそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R^aは一般式(I)におけるそれと同義であり、また好 ましい範囲も同様である。

【0073】一般式 (B-II) で表される化合物のう ち、更に好ましくは一般式 (B-VIII) で表される化合 物である。

[0074]

【化29】

一般式(B-VIII)

【0075】式中、Rb81、Rb82およびRb83は、それ ぞれ一般式(I)におけるR*と同義であり、また好ま しい範囲も同様である。 Zьв1、 Zьв2および Zьв3は、 それぞれ一般式(B-V)におけるZ_bsと同義であり、 また好ましい範囲も同様である。L₁、L₂およびL ₃は、それぞれ一般式 (A-II) におけるLと同義であ る。L₁、L₂、L₃として好ましくは、単結合、アリー レン、二価の芳香族ヘテロ環およびこれらの組合わせか ら成る連結基であり、より好ましくは単結合、ベンゼ ン、ナフタレン、アントラセン、ピリジン、ピラジン、 チオフェン、フラン、オキサゾール、チアゾール、オキ サジアゾール、チアジアゾール、トリアゾールおよびこ れらの組合わせから成る連結基であり、更に好ましくは 単結合、ベンゼン、チオフェンおよびこれらの組合わせ から成る連結基であり、特に好ましくは単結合、ベンゼ ンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、最も 好ましくは単結合である。L₁、L₂、L₃は置換基を有 してもよく、置換基としては一般式(I)のRで表され る基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も 同様である。

【0076】Yは窒素原子または1,3,5-ベンゼン トリイル基を表すが、後者は2,4,6位に置換基を有 してもよく、置換基としては例えばアルキル基、アリー ル基、ハロゲン原子などが挙げられる。Yとして好まし くは窒素原子または無置換1,3,5-ベンゼントリイ ル基であり、より好ましくは無置換1,3,5-ベンゼ ントリイル基である。一般式 (B-II) で表される化合 物のうち、特に好ましくは下記一般式 (B-IX) で表さ れる化合物である。

[0077]

【化30】

【0078】式中、Rь91、Rь92およびRь93は、それ ぞれ一般式(I)におけるR°と同義であり、また好ま しい範囲も同様である。 Zья」、 Zья2および Zья3は、 それぞれ一般式 (B-V) における Z b 5 と 同義であり、 また好ましい範囲も同様である。一般式 (B-II) で表 される化合物のうち、最も好ましくは下記一般式 (B-X)で表される化合物である。

[0079]

【化31】

10

30

【0080】式中、Rb101、Rb102およびRb103は、そ れぞれ一般式(I)におけるR*と同義であり、また好 ましい範囲も同様である。 R 6104、 R 6105 および R 6106 は、それぞれ置換基を表し、置換基としては一般式

(I) のRで表される基として挙げたものが適用でき、 また好ましい範囲も同様である。また可能な場合、置換 基同士が連結して環を形成してもよい。p1、p2およ びp3は、それぞれ0ないし3の整数を表し、好ましく は0ないし2、より好ましくは0または1、更に好まし くは0である。

【0081】一般式(I)で表される化合物のうち、も う一つの好ましい化合物はトリアジン化合物であり、さ らに好ましくは下記一般式(C-II)で表される化合物 である。

[0082]

【化32】

一般式 (C-II)

【0083】R^{C11}、R^{C12}およびR^{C13}は、一般式(A -II) におけるR₁、R₂と同義であり、また好ましい範 囲も同様である。R^{C11}、R^{C12}およびR^{C13}で表される 基はさらに置換基を有していてもよく、置換基としては 一般式(I)におけるRとして挙げたものが適用でき、 置換基として好ましくは脂肪族炭化水素基、アリール 基、ヘテロ環基、アミノ基、ハロゲン原子であり、より 50 好ましくはアルキル基、アミノ基である。

40

【0084】本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上含む ヘテロ環骨格を有する化合物は金属錯体を形成したもの でもよい。また、本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上 含むヘテロ環骨格を有する化合物は、上記骨格がポリマ 一主鎖に接続された高分子量化合物(好ましくは質量平 均分子量1000~500000、より好ましくは5 000~200000、更に好ましくは10000~ 1000000) もしくは、本発明の上記骨格を主鎖に 持つ高分子量化合物 (好ましくは質量平均分子量100*

一般式(D)

$$\begin{array}{c|c}
 & H & H_2 \\
 & C & C & \\
 & (A^D)_m & (R^{D2})^{m^D} \\
 & & (R^{D1})^{n^D}
\end{array}$$

【0087】ArプおよびArではアリーレン基または二 20 価の芳香族へテロ環基を表し、好ましくはアリーレン基 である。R^{D1}、R^{D2}、R^{E1}、R^{E2}はそれぞれ置換基を表 し、置換基としては一般式(I)のRとして挙げた基が 適用でき、好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケ ニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、ア リールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、 ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくは水素原 子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリー ル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原 子、シアノ基、芳香族へテロ環基であり、更に好ましく 30 本発明はこれらに限定されるものではない。 は水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環 基であり、特に好ましくは水素原子、アルキル基であ る。nºは0~3の整数を表し、好ましくは0~1であ

*0~5000000、より好ましくは5000~200 0000、更に好ましくは10000~100000 0)であっても良い。

【0085】上記、高分子量化合物として好ましくは、 下記一般式(D)または下記一般式(E)で表される繰 り返し単位を含む重合体である。

[0086]

【化33】

一般式(E)

る。m^D、n^E、m^Eは0~5の整数を表し、好ましくは 0~1である。m' およびn' はそれぞれ0または1を 表し、好ましくは1である。

【0088】一般式(D) または一般式(E) で表され る繰り返し単位を有する重合体は、ホモポリマーであっ てもよく、他のモノマーとの共重合体であってもよい。 またランダム共重合体であってもよく、ブロック共重合 体であってもよい。

【0089】以下に本発明で用いるヘテロ原子を2つ以 上含むヘテロ環骨格を有する化合物の具体例を示すが、

[0090]

【化34】

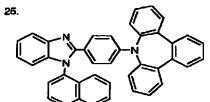
38 1. 3. 5. 7. 8. 9. 10.

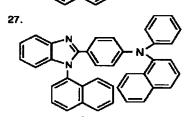
[0091]

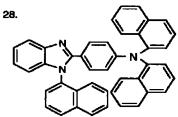
【化35】

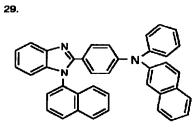
[0092] [他36]

22.
$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & &$$









[0093]

【化37】

32.
$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\$$

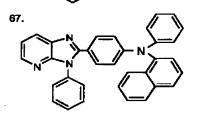
[0094]

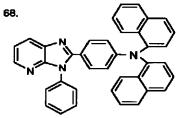
【化38】

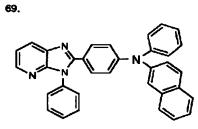
[0095] [化39]

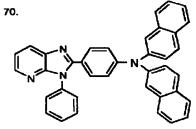
[0096] [化40]

62.
$$\bigvee_{N} \bigvee_{N} \bigvee_{C_2 H_5}$$





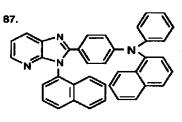


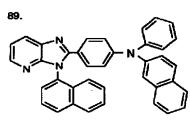


[0097]

【化41】

【0098】





[0099]

【化43】

[0100] [化44]

[0101]

【化45】

[0102]

[0103]

【化47】

【化48】

[0104]

141.

[0105]

30 【化49】

[0106]

[0107]

【0108】 【化52】

質量平均分子量 18,000 (ポリスチレン換算)

168.

169.

[0110]

【化54】

76

質量平均分子量 18,000

x:y=1:50 (質量比)

171.

172.

[0111]

【化55】

77

175. (ポリスチレン換算) x:y=1:50 (質量比)

[0112]

【化56】

[0113]

【化57】

[0114]

20 【化58】

[0115] 【化59】

[0116]

【化60】

[0117]

【化61】

【化62】

[0118]

【0119】 【化63】

93

【0120】 【化64】

10

20

230. N N N N

234.
$$\begin{pmatrix} N & N & N \\ N & N & N \end{pmatrix}$$
 30

【0121】 【化65】

97

241.

242.

Se N Se N

【0122】 【化66】 243.

10 244.

245. 20

【0123】 30 【化67】

246.

【0125】 【化69】

101

253.

254.

【0126】 【化70】

255.

102

256.

10

20

30

40

【0127】 【化71】 **257.**

258.

259.

[0128] 50

104

【化72】

260.

261.

262.

[0129]

【化73】

263.

106

264.

[0130]

【化74】

107_

265.

266.

【化75】

[0131]

109

267.

268.

【0132】 【化76】

271.

【0133】 【化77】

272.

273.

10

20

30

274.

【0134】 【化78】

10

20

【0135】 【化79】 【0136】 【化80】

280.

282.

283.

【0137】 【化81】 **284**.

285.

[0138] 【化82】 286.

287.

10

【0139】 【化83】 30

40

291.

118

292.

10

20

30

293.

【0141】 【化85】

294. [0142] NNN [位86]

10

20

N N N 30

[0143] [化87]

123

302.

質量平均分子量 21,000 (ポリスチレン換算)

303,

質量平均分子量 14,000 (ポリスチレン換算)

[0144]

【化88】

304.

質量平均分子量 17,000 (ポリスチレン換算) m:n=1:1 (モル比)

305.

10

20

306.

質量平均分子量 23,000 (ポリスチレン換算)

30

[0145] 【化89】

[0146]

【化90】

【化91】

[0147]

315.

【化92】

[0148]

[0149]

133 **323.**

[0150]

【化94】

30 【化95】

[0151]

[0152]

[0153]

【化97】

[0154]

【化98】

343.

344.

345.

346.

[0155]

【化100】

[0156]

[0157]

【化102】

m:n=1:50 (質量比)

[0158]

151 **358**.

質量平均分子量 5,000 (ポリスチレン換算)

359.

質量平均分子量 10,000 (ポリスチレン換算)

360.

質量平均分子量 8,000 (ポリスチレン換算)

【化103】

[0159]

361.

362.

[0160]

【化104】

m:n=1:50 (質量比)

155 **364**.

【化105】

[0161]

【化106】

[0162]

159 **372**.

373.

【化107】

[0163]

161 378.

380.

【0164】本発明で用いる一般式 (I) で表される化 20 合物は、特公昭44-23025号、同48-8842 号、特開昭53-6331号、特開平10-92578 号、米国特許3,449,255号、同5,766,7 79号、J. Am. Chem. Soc., 94, 241 4 (1972), Helv. Chim. Acta, 6 3,413(1980), Liebigs Ann. C hem., 1423 (1982) などに記載の方法を参 考にして合成できる。

【0165】安価かつ大面積の製造が可能な塗布プロセ スによる製造を指向した場合、本発明の有機層は高分子 化合物を含むことが好ましい。この場合高分子化合物と は、質量平均分子量が1000~500000、好ま しくは5000~200000、更に好ましくは10 381.

000~100000の化合物であり、電子の注入・ 輸送機能、ホールの注入・輸送機能、電荷再結合機能、 励起子エネルギーの発光材料への効率よい移動機能、発 光機能のうち、少なくとも一つの機能を有するもの、ま たはそれ自身は上記の機能は有しないが、各機能性材料 を分散し、成膜可能にしうるものであり、例えばポリビ ニルカルバゾール、ポリアリーレンビニレン、ポリカー ボネート、ポリメチルメタクリレートなどが挙げられ

【0166】以下に本発明の一般式(I)で表される化 合物の合成法について具体例をもって説明する。 合成例1.例示化合物230の合成

[0167]

【化108】

【0168】1-1. 化合物230aの合成2-クロロ-3-ニトロピリジン50.8g(0.320-クロロ-3-ニトロピリジン50.8g(0.320-ル)、炭酸カリウム90.8g(0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g(0.0416モル)、ヨウ化銅(I)7.90g(0.0416モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、アニリン45.7g(0.気下攪拌しているところへ、アニリン45.7g(0.3490-ル)を加えた。5時間加熱還流した後、反応液490モル)を加えた。5時間加熱還流した後、反応液490モル)を加えた。シリカゲルカラムクロを濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製しマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物230aを45.7g(0.21モル)得た。収率66%。

【0169】1-2. 化合物230bの合成化合物230a 17.0g(0.0790モル)をテトラヒドロフラン170ミリリットルに溶解し、室温にトラヒドロフラン170ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム69.0g(0.396モル)/水220ミリリットルの溶液を滴下した。1時間攪拌した後、0ミリリットルの溶液を滴下した。1時間攪拌した後、酢酸エチル170ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナ酢酸エチル170ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナ

トリウム13.6g(0.162モル)/水140ミリリットルの溶液を滴下した。更に4,4'ービフェニルジカルボニルクロリド10.0g(0.0358モル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下5時間攪拌した。析出した固体を濾取し、水、次いで酢酸エチルで洗浄することにより化合物230bを16.0g(0.0277モル)得た。収率77%。

【0170】1-3.例示化合物230の合成 化合物230b 10.0g(0.0173モル)、P ートルエンスルホン酸一水和物2.3g(0.0121 モル)にキシレン300ミリリットルを加え、窒素雰囲 気下6時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温ま で冷却した後、析出した固体を濾取し、ジメチルホルム アミド/アセトニトリルにて再結晶することにより例示 化合物230を5.20g(9.62ミリモル)得た。 収率57%。融点:298~300℃

【0171】合成例2.例示化合物246の合成 【0172】

a single or

【化109】

230a (R=phenyl)

247a (R=3-methylphenyl)

248a (R=4-tert-butylphenyl)

291a (R=2-methylphenyl)

294a (R=8-quinolyl)

246b (R=phenyl)

247b (R=3-methylphenyl)

248b (R=4-tert-butylphenyl)

291b (R=2-methylphenyl)

294b (R=8-quinolyl)

[0173]

$$\stackrel{\text{H}^{+}}{\longrightarrow} \qquad \stackrel{\text{N}}{\longrightarrow} \qquad$$

例示化合物246(R=phenyl)

例示化合物247(R=3-methylphenyl)

例示化合物248(R=4-tert-butylphenyl)

例示化合物291(R=2-methylphenyl)

例示化合物294(R=8-quinolyl)

【0174】2-1. 化合物 246 b の合成 化合物 230 a 15.0 g (0.0697 モル)をテトラヒドロフラン 150 ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム 60.9 g (0.345 モル)/水 200 ミリリットルの溶液を滴下した。 2 時間攪拌した後、酢酸エチル 150 ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム 12.0 g (0.143 モル)/水 120 ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド 120 に 120

ットルの溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(vol/vol))にて精製した後、ジメチルホルムアミド/アセトニトリルにて再結晶することにより化合物 246 b edotarrow り 得た。収率 29%。

【0175】2-2.例示化合物246の合成

化合物246b 3.70g(5.20ミリモル)、p ートルエンスルホン酸ー水和物 O. 7 g (3. 6 8 ミリ モル) にキシレン100ミリリットルを加え、窒素雰囲 気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温ま で冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムク ロマトグラフィー (展開溶媒:クロロホルム/メタノー $\mu = 20/1$ (vol/vol))にて精製した後、ク ロロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示 化合物246を1.70g(2.58ミリモル)得た。 収率50%。融点:279~281℃

【0176】合成例3.例示化合物247の合成

3-1. 化合物247aの合成 2-クロロー3-ニトロピリジン50.0g(0.31 5モル)、炭酸カリウム90.8g(0.657モ ル) 、ヨウ化銅(I) 7.90g(0.0416モ ル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲 気下攪拌しているところへ、m-トルイジン45.0g (0.420モル) を加えた。8時間加熱還流した後、 反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラ ムクロマトグラフィー (展開溶媒:クロロホルム) にて 精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶するこ とにより化合物247aを51.0g(0.222モ ル) 得た。収率71%。

【0177】3-2. 化合物247bの合成

化合物247a 32.5g(0.142モル)をテト ラヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて 窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイ トナトリウム124g (0. 712モル) /水320ミ リリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミ リリットルを加えた。 1 時間攪拌した後、酢酸エチル 3 80ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム2 4.4g (0.290モル) /水55ミリリットルの溶 液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g (0.0396モル) /酢酸エチル100ミリリットル の溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和 食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽 和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムによ り乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロ マトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール =10/1 (vol/vol)) にて精製することによ 40 り化合物247bを10.2g(0.0135モル)得

た。収率34%。 【0178】3-3.例示化合物247の合成 化合物247b 3.30g(4.38ミリモル)、p ートルエンスルホン酸一水和物 O. 5 g (2.63 ミリ モル) にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気 下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで 冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロ =20/1(vol/vol))にて精製した後、クロ 50 ル)、ヨウ化銅(I)7.90g(0.0416モ

ロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化 合物247を1.97g(2.81ミリモル)得た。収

融点:258~259℃

【0179】合成例4.例示化合物248の合成 4-1. 化合物248aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン45.5g(0.28 6モル)、炭酸カリウム81.1g(0.587モ ル) 、ヨウ化銅(I)7.10g(0.0373モ

10 ル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲 気下攪拌しているところへ、4-tertーブチルアニ リン40.0g(0.268モル)を加えた。8時間加 熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。 シリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒:クロ ロホルム) にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンに て再結晶することにより化合物248aを52.0g

(0.192モル) 得た。収率72%。

【0180】4-2. 化合物248bの合成 化合物248a 34.8g(0.128モル)をテト ラヒドロフラン350ミリリットルに溶解し、室温にて 窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイ トナトリウム112g (0.643モル) /水320ミ リリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール90ミリ リットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル35 0ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム22. 0g (0.262モル) /水50ミリリットルの溶液を 滴下した。更にトリメシン酸クロリド9.5g(0.0) 358モル) /酢酸エチル90ミリリットルの溶液を滴 下し、室温下2時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加 え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で 洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥し た。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラ フィー (展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/ 1 (vol/vol)) にて精製することにより化合物 248bを12.0g(0.0136モル)得た。収率 38%。

【0181】4-3.例示化合物248の合成 化合物248b 3.00g(3.41ミリモル)、p ートルエンスルホン酸一水和物 O. 3g(1.58ミリ モル) にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気 下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで 冷却した後、析出した固体を濾取した後、クロロホルム /メタノールにて再結晶することにより例示化合物24 8を2.06g(2.49ミリモル)得た。収率73 %。融点:300℃以上

【0182】合成例5. 例示化合物291の合成 5-1. 化合物291aの合成 2-クロロ-3-ニトロピリジン50.0g(0.31 5モル)、炭酸カリウム90.8g(0.657モ

ル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、ロートルイジン45.0g(0.420モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物291aを46.3g(0.202モル)得た。収率64%。

【0183】5-2. 化合物291bの合成 化合物291a 32.5g(0.142モル)をテト ラヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて 窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイ トナトリウム124g(0.712モル) /水320ミ リリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミ リリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル3 80ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム2 4.4g(0.290モル) /水55ミリリットルの溶 液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g (0.0396モル) /酢酸エチル100ミリリットル の溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和 20 食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽 和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムによ り乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロ マトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール =10/1 (vol/vol)) にて精製することによ り化合物291bを8.5g(0.0112モル)得 た。収率28%。

【0185】合成例6. 例示化合物294の合成6-1. 化合物294aの合成2-クロロ-3-二トロピリジン59. 0g(0.347モル)、炭酸カリウム105g(0.760モル)、コウ化銅(I)9.40g(0.0494モル)、トル

エン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、8-アミノキノリン75.0g(0.520モル)を加えた。16時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物294aを27.0g(0.102モル)得た。収率29%。

た。収率29%。 【0186】6-2. 化合物294bの合成 10 化合物294a 25.0g(93.9ミリモル)をテ トラヒドロフラン220ミリリットルに溶解し、室温に て窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファ イトナトリウム82.2g(0.472モル)/水42 0ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール70 ミリリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル 380ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム2 4.4g(0.290モル) /水55ミリリットルの溶 液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド7.55g (28.4ミリモル) /酢酸エチル100ミリリットル の溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和 食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽 和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムによ り乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロ マトグラフィー (展開溶媒:クロロホルム/メタノール =10/1 (vol/vol)) にて精製することによ り化合物294bを7.86g (9.09ミリモル) 得

た。収率32%。
【0187】6-3.例示化合物294の合成
化合物294b 5.00g(5.78ミリモル)、p
ートルエンスルホン酸一水和物0.5g(2.63ミリモル)にキシレン100ミリリットルを加え、窒素雰囲気下5時間加熱環流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(vo1/vo1))にて精製した後、クロロホルム/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物294を1.87g(2.31ミリモル)得た。収率40%。

融点:384℃

40 合成例7. 例示化合物177の合成

[0188]

【化111】

【0189】7-1.177aの合成

化合物230a50.0g(0.232モル)をテトラ ヒドロフラン500ミリリットルに溶解させ、窒素雰囲 気下、室温で攪拌しているところに、ハイドロサルファ イトナトリウム200g(1.149モル)/水700 ミリリットルの溶液を滴下した。更にメタノール50ミ リリットルを加えて、1時間攪拌した。次に、酢酸エチ ル500ミリリットルを加えて、炭酸水素ナトリウム4 0g (0.476モル) /水400ミリリットルの溶液 を加えた。更に4-プロモベンソイルクロリド61g (0.232モル) /酢酸エチル170ミリリットルの 溶液を滴下し、室温で5時間攪拌した。酢酸エチルで抽 出し、水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸マグ ネシウムで乾燥し、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカ ラムクロマトグラフィー (展開溶媒:クロロホルム)で 精製した後、クロロホルム/ヘキサンで再結晶すること により化合物177aを58.9g(0.16モル)得 た。収率69%。

【0190】7-2. 化合物177bの合成 化合物177a59.5g(0.16モル)をキシレン **1リットルに溶解させ、p-トルエンスルホン酸一水和** 物 9. 5 g (0.05モル)を加え、窒素雰囲気下、5 時間加熱還流しながら共沸脱水を行った。反応液を室温 まで冷却した後、析出した固体を濾取し、エタノール/

クロロホルムで再結晶することにより、化合物 177b を42.8g(0.12モル)得た。収率76%。

【0191】7-3. 化合物177cの合成 20

化合物177b4.73g(13.52ミリモル)、4 ービニルフェニルボロン酸2.0g(13.52ミリモ ル) にジエチレングリコールジメチルエーテル100ミ リリットルと水50ミリリットルを加え、激しく攪拌し た。その中に炭酸ナトリウム2.9g(27.04ミリ モル)と炭素に担持させたパラジウム150ミリグラム およびトリフェニルホスフィン120ミリグラムを加 え、5時間加熱還流した。室温に冷却した後不溶部を濾 過により除き、溶液を酢酸エチルで抽出した。有機層を 水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸マグネシウ ムで乾燥し、溶媒を留去した。クロロホルム/ヘキサン にて再結晶することにより、化合物177aを1.0g (2.68ミリモル) 得た。収率20%。

【0192】7-4. 例示化合物177の合成 化合物177c175mg (2.0ミリモル) をジメチ

ルホルムアミド7ミリリットルに溶解し、2,2'ーア ゾビス(2,4ージメチルバレロニトリル)(和光純 薬) 5.8ミリグラムを加え、70℃で8時間過熱攪拌 した。室温に冷却後、アセトンから再沈精製することに より例示化合物177を100mg得た。質量平均分子 量70000、数平均分子量20000 (ポリスチレン 換算) であった。

合成例 8. 例示化合物 2 8 5 の合成

[0193]

【化112】

【0194】8-1. 化合物285aの合成

化合物230a50.0g(0.232モル)をテトラ ヒドロフラン500ミリリットルに溶解させ、窒素雰囲 20 気下、室温で攪拌しているところに、ハイドロサルファ イトナトリウム202g (1.149モル) /水700 ミリリットルの溶液を滴下した。更にメタノール50ミ リリットルを加えて、1時間攪拌した。次に、酢酸エチ ル500ミリリットルを加えて、炭酸水素ナトリウム3 9g(0.464モル)/水400ミリリットルの溶液 を加えた。更に4-クロロメチルベンゾイルクロリド4 4g(0.232モル)/酢酸エチル170ミリリット ルの溶液を滴下し、室温で5時間攪拌した。酢酸エチル で抽出し、水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸 30 マグネシウムで乾燥し、溶媒を減圧留去した。シリカゲ ルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒:クロロホル ム)で精製した後、クロロホルム/ヘキサンで再結晶す ることにより化合物285aを38.5g(0.113 モル) 得た。収率49%。

【0195】7-2. 化合物285bの合成

化合物 2 8 5 a 3 5 g (0.104モル)をキシレン450ミリリットルに溶解させ、pートルエンスルホン酸ー水和物6.5 g (0.034モル)を加え、窒素雰囲気下、2時間加熱還流しながら共沸脱水を行った。反応40液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、エタノール/クロロホルムで再結晶することにより、化合物285bを19.95g (0.0624モル)得た。収率60%。

【0196】7-3. 化合物285cの合成

化合物 285b16g(0.050 + N) とトリフェニルホスフィン 26.2g(0.100 + N) をジメチルホルムアミド 300 ミリリットルに溶解させ、4時間加熱還流した。室温まで冷却すると白色の結晶が析出した。白色結晶を減圧濾過ににより濾取し、ジエチルエーテルで繰り返し洗浄し、化合物 285c218.92g(0.033 + N) 得た。収率 65%。

【0197】7-4. 化合物285dの合成

7-5. 例示化合物 285の合成

化合物 285d960mgをジメチルホルムアミド 2ミリリットルに溶解し、2, 2'ーアゾビス(2, 4ージメチルバレロニトリル)(和光純薬社)を 2mg加え、70 \mathbb{C} で 8時間過熱攪拌した。室温まで冷却した後、アセトンから再沈精製を行い、例示化合物 285 を白色粉末として 454 mg得た。質量平均分子量が 5000 0、数平均分子量が 2000

合成例9. 例示化合物306の合成

[0198]

【化113】

【0199】原料となる2-クロロ-4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジンは日本国特許第3067878号に記載の既知の方法により合成した。

9-1. 化合物 306 aの合成

4-プロモスチレン3.67g(20.0ミリモル)を テトラヒドロフラン50ミリリットルに溶解させ、-70℃に冷却した。n-プチルリチウムのヘキサン溶液 (1.6モル/リットル)13.1ミリリットル(2 1.1ミリモル)をゆっくりと滴下し、その後2-クロ20ロ-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン5.35g(20.0ミリモル)をテトラヒドロフラン100ミリリットルに溶解した溶液をゆっくりと滴下し、-70℃で3時間攪拌した。室温まで昇温し、得られた反応混合物を酢酸エチルで抽出し、有機相を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を留去、乾燥することにより化合物306aを900mg(2.68ミリモル)得た。収率13%。

【0200】9-2. 例示化合物306の合成 化合物306a900mg(2.68ミリモル)をジメ 30 チルホルムアミド2ミリリットルに溶解し、2,2'-アソビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)(和光純 薬社)を2mg加え、70℃で8時間加熱攪拌した。室 温まで冷却した後、アセトンから再沈精製を行い、例示 化合物306を白色粉末として760mg得た。質量平 均分子量が23000、数平均分子量が12000であった。

【0201】本発明におけるりん光発光性化合物は、多重度の異なる項間の遷移に基づく発光(例えば三重項→一重項)が他の物質よりも強いものと定義する。好まし 40 くは常温におけるりん光量子収率が25%以上のものであり、より好ましくは40%以上のものであり、さらに好ましくは60%のものであり、特に好ましくは80%以上のものであり、例えば金属を含まない有機化合物や金属一へテロ原子結合を有する金属錯体、金属一炭素結合を有する有機金属錯体などが挙げられ、下記に記載のオルトメタル化金属錯体が好ましい。次に有機金属錯体について説明する。有機金属錯体は、例えば「有機金属化学ー基礎と応用ー」p150,232裳華房社山本明夫著(1982年発行)の6ページで定義されているよ 50

うに、金属と有機基が金属一炭素の直接結合により結びついた化合物のことを指す。次に、本発明で用いるオルトメタル化金属錯体について説明する。オルトメタル化金属錯体とは、例えば「有機金属化学-基礎と応用-」p150,232裳華房社山本明夫著1982年発行、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」 p71-p77,p135-p146 Springer-Verlag社 H. Yersin著1987年発行等に記載されている化合物群の総称である。金属錯体の中心金属としては、特に限定はないが遷移金属が好ましく、本発明では、中でも特にロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができる。この中で特に好ましいものはイリジウムである。

【0202】オルトメタル化金属錯体の金属の価数は特 に限定しないが、イリジウムを用いる場合には3価が好 ましい。オルトメタル化金属錯体の配位子は、オルトメ タル化金属錯体を形成し得る物であれば特に問わない が、例えば、アリール基置換含窒素へテロ環(アリール 基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上で あり、アリール基としては例えばフェニル基、ナフチル 基、アントリル基、ピレニル基などが挙げられ、含窒素 ヘテロ環としては、例えば、ピリジン、ピリミジン、ピ ラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキ サリン、フタラジン、キナゾリン、ナフチリジン、シン ノリン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、 ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリア ゾール、チアジアゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾ オキサゾール、ベンゾチアゾール、フェナントリジンな どが挙げられる)、ヘテロアリール基置換含窒素ヘテロ 環(ヘテロアリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素 原子の隣接炭素上であり、ヘテロアリール基としては例 えば前記の含窒素ヘテロ環誘導体を含有する基、チエニ ル基、フリル基などが挙げられる)、7,8-ベンゾキ ノリン、ホスフィノアリール、ホスフィノヘテロアリー ル、ホスフィノキシアリール、ホスフィノキシヘテロア リール、アミノメチルアリール、アミノメチルヘテロア リール等およびこれらの誘導体が挙げられる。アリール 基置換含窒素芳香族ヘテロ環、ヘテロアリール基置換含 窒素芳香族へテロ環、7,8-ベンゾキノリンおよびこ

れらの誘導体が好ましく、フェニルピリジン、チエニル ピリジン、7、8-ベンゾキノリンおよびこれらの誘導 体がさらに好ましく、チエニルピリジンおよびその誘導 体、7,8-ベンゾキノリンおよびその誘導体が特に好 ましい。

【0203】本発明の化合物は、オルトメタル化金属錯 体を形成するに必要な配位子以外に、他の配位子を有し ていても良い。他の配位子としては種々の公知の配位子 が有るが、例えば、「Photochemistry and Photophysic s of Coordination Compounds」 Springer-Verlag社 H. 10 Yersin著1987年発行、「有機金属化学-基礎と応用 -」裳華房社山本明夫著1982年発行等に記載の配位 子が挙げられ、好ましくは、ハロゲン配位子 (好ましく は塩素配位子)、含窒素ヘテロ環配位子(例えばビピリ ジル、フェナントロリンなど)、ジケトン配位子であ り、より好ましくは塩素配位子、ビピリジル配位子であ

【0204】本発明のオルトメタル化金属錯体が有する 配位子の種類は1種類でも良いし、複数の種類があって も良い。錯体中の配位子の数は、好ましくは1~3種類 20 であり、特に好ましくは1,2種類であり、さらに好ま しくは1種類である。

【0205】本発明のオルトメタル化金属錯体の炭素数 は、好ましくは5~100、より好ましくは10~8 0、さらに好ましくは14~50である。

【0206】本発明のオルトメタル化金属錯体の好まし い形態は、下記一般式(K-I)で表される部分構造を 有する化合物またはその互変異性体である。

[0207]

【化114】





【0208】式中、Mは遷移金属を表す。Qkiは5員ま たは6員の芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。 Q_{k2}は5員または6員の芳香族アゾール環を形成するに 必要な原子群を表す。Mで表される遷移金属として好ま 40 I) または (K-III) で表される化合物またはその互変 しくは、ロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウ ム、パラジウムであり、より好ましくはロジウム、白 金、イリジウムであり、更に好ましくは白金、イリジウ

178

ムであり、特に好ましくはイリジウムである。Qx1で形 成される5 員または6 員の芳香族環は、芳香族炭化水素 環、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、例えばベンゼ ン、ナフタレン、アントラセン、ピレン、ピリジン、キ ノリン、イソキノリン、ピリダジン、ピリミジン、ピラ ジン、チオフェン、フラン、ピロール、ピラゾール、イ ミダゾール、チアゾール、オキサゾール、チアジアゾー ル、オキサジアゾール、トリアゾール、キノキサリン、 フタラジン、ナフチリジン、シンノリン、フェナントロ リン、ベンゾチアゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾ イミダゾール、フェナントリジンなどが挙げられ、好ま しくはベンゼン、ナフタレン、ピリジン、キノリン、イ ソキノリン、チオフェン、フランであり、より好ましく はベンゼン、ナフタレン、ピリジン、キノリン、イソキ ノリン、チオフェンであり、更に好ましくはベンゼン、 ナフタレン、チオフェンである。

アゾール環としては、例えばピリジン、キノリン、イソ キノリン、ピリダジン、ピリミジン、ピリダジン、ピラ ゾール、イミダゾール、チアゾール、オキサゾール、チ アジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、キノ キサリン、フタラジン、ナフチリジン、シンノリン、フ ェナントロリン、ベンゾチアゾール、ベンゾオキサゾー ル、ベンゾイミダゾール、フェナントリジンなどが挙げ られ、好ましくはピリジン、キノリン、イソキノリン、 ピラゾール、ピリダジンであり、より好ましくはピリジ ン、キノリン、イソキノリン、ピラゾールであり、更に 好ましくはピリジン、キノリン、イソキノリンである。 Qx1、Qx2で形成される環は置換基を有してもよく、置 30 換基としては一般式(I)のRで表される基として挙げ たものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。ま た置換基同士が連結して環を形成しても良い。また、一 般式(K-I)で表される部分構造を有する化合物また はその互変異性体は、化合物中に遷移金属を一つ有して も良いし、また、2つ以上有するいわゆる複核錯体であ っても良い。他の金属原子を同時に含有していても良

【0210】一般式 (K-I) で表される部分構造を有 する化合物のうち、より好ましくは下記一般式(K-I 異性体である。

[0211]

【化115】

一般式(K-II)

一般式(K-III)

$$(R^{k21})_{q^{21}} \qquad (R^{k31})_{q^{31}} \qquad (R^{k31})_{q^{31}} \qquad (R^{k31})_{q^{31}} \qquad (R^{k32})_{q^{32}} \qquad (R^{k32$$

【0212】式中、 R^{k21} 、 R^{k22} 、 R^{k31} および R^{k32} はそれぞれ置換基を表す。 q^{21} 、 q^{22} および q^{32} はそれぞれ0~4の整数を表し、 q^{31} は0~2の整数を表す。 q^{21} 、 q^{22} 、 q^{31} 、 q^{32} が2以上の場合、複数個の R^{k21} 、 R^{k22} 、 R^{k31} 、 R^{k32} はそれぞれ同一または互いに異なっても良い。

【0213】 R^{k21} 、 R^{k22} 、 R^{k31} 、 R^{k32} で表される置換基としては、例えば一般式(I) におけるRで表される基として挙げたものが適用できる。 R^{k21} 、 R^{k22} 、 R^{k31} 、 R^{k32} は更に置換されてもよい。また、置換基同士が結合して縮環構造を形成しても良い。

【0214】 R^{k21} 、 R^{k22} 、 R^{k31} 、 R^{k32} としては好ましくはアルキル基、アリール基、ヘテロ環基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、結合して縮環構造を形成する基が好ましく、より好ましくはアルキル基、アリール基、フッ素原子、結合して芳香族縮環構造を形成する基である。 q^{21} 、 q^{22} 、 q^{31} 、 q^{32} としては0、1、2が好ましく、より好ましくは q^{21} + q^{22} =0、1、2、 q^{31} + q^{32} =0、1、2である。

【0215】 L_{k2} および L_{k3} はそれぞれ配位子を表す。配位子としては前記オルトメタル化金属錯体を形成する 30 に必要な配位子、およびその他の配位子で説明した配位子が挙げられる。 L_{k2} 、 L_{k3} はオルトメタル化イリジウム錯体を形成するに必要な配位子、含窒素へテロ環配位子、ジケトン配位子、ハロゲン配位子が好ましく、より*

【0212】式中、 R^{k21} 、 R^{k22} 、 R^{k31} および R^{k32} は 10*好ましくはオルトメタル化イリジウム錯体を形成するにそれぞれ置換基を表す。 \mathbf{q}^{21} 、 \mathbf{q}^{22} および \mathbf{q}^{32} はそれぞ 必要な配位子、ジケトン配位子、ビビリジル配位子であ \mathbf{h} 0~4の整数を表し、 \mathbf{q}^{31} は0~2の整数を表す。 \mathbf{q}

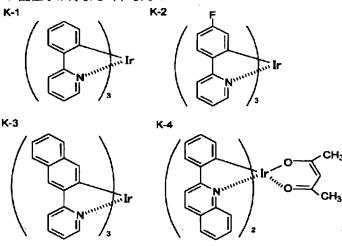
【0216】 m^{21} およびは m^{31} はそれぞれ1、2、3を表し、好ましくは2、3であり、より好ましくは3である。 m^{22} および m^{32} は、それぞれ $0\sim 5$ の整数を表し、好ましくは0、1、2であり、より好ましくは0、1である。 m^{21} と m^{22} 、 m^{31} と m^{32} の数の組み合わせは、一般式 (K-III)、 (K-III) で表される金属錯体が中性錯体となる数の組み合わせが好ましい。

20 【0217】本発明のオルトメタル化金属錯体は一般式 (K-1)の繰り返し単位をひとつ有する、いわゆる低分子化合物であっても良く、また、一般式 (K-1)の繰り返し単位を複数個有するいわゆる、オリゴマー化合物、ポリマー化合物 (平均分子量 (Mw:ポリスチレン換算)は好ましくは1000~5000000、より好ましくは2000~1000000、さらに好ましくは3000~100000である。)であっても良い。本発明で用いるオルトメタル化金属錯体は低分子化合物が好ましい。

【0218】次に本発明に用いるりん光発光性化合物の例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0219]

【化116】



[0220]

【化117】

K-28

K-31

K-32

[0227]

*【能124】

K-35

K-36

[0228]

【化125】

K-40

K-41

K-42

[0229]

【化126】

189 **K-43**

[0230]

【化127】

【0231】本発明で用いるオルトメタル化金属錯体は 30 Inorg.Chem. 1991年, 30号, 1685頁.,同 1988年, 27 号, 3464頁.,同 1994年, 33号, 545頁. Inorg.Chim.Ac ta 1991年, 181号, 245頁. J.Organomet.Chem. 1987 年, 335号, 293頁.J.Am.Chem.Soc. 1985年, 107号, 1431頁. 等、種々の公知の手法で合成することができ る。次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して 説明する。本発明の化合物を含有する発光素子の有機層 の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加 熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コ ーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法など の方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コ ーティング法が好ましい。

【0232】本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電 極間に少なくとも発光層を含む複数の有機化合物膜を形 成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送 層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよ く、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたもの であってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を 用いることができる。

どに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化 物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用 いることができ、好ましくは仕事関数が4eV以上の材 料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化イ ンジウム、酸化インジウムスズ (ITO) 等の導電性金 属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金 属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物 または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物 質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなど の有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物な どが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、 特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好 ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能である が、通常10nm~5µmの範囲のものが好ましく、よ り好ましくは $50nm\sim1\mu$ mであり、更に好ましくは 100nm~500nmである。

【0234】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アル カリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが 用いられる。ガラスを用いる場合、その材質について は、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アル 【0233】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層な 50 カリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライ

ムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常 0.2 mm以上、好まし材は 0.7 mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えば I T O の場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法(ゾルーゲル法など)、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極の人は、次ブの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極といる。というでは、大学をの他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えば I T O の場合、 U V ーオゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0235】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層な どに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送 層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン 化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の 材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化 物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いる ことができ、具体例としてはアルカリ金属 (例えばし i、Na、K、Cs等)及びそのフッ化物、酸化物、ア ルカリ土類金属 (例えばMg、Ca等) 及びそのフッ化 物、酸化物、金、銀、鉛、アルニウム、ナトリウムーカ リウム合金またはそれらの混合金属、リチウムーアルミ ニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウムー銀 合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテルビ ウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数 が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウ ム、リチウムーアルミニウム合金またはそれらの混合金 属、マグネシウムー銀合金またはそれらの混合金属等で ある。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけで なく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ること もできる。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能である が、通常10nm ~ 5 μ mの範囲のものが好ましく、よ り好ましくは $50nm\sim1\mu m$ であり、更に好ましくは 100nm~ 1μ mである。陰極の作製には電子ビーム 法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング 法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着すること も、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さら に、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成するこ とも可能であり、またあらかじめ調製した合金を蒸着さ せてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ま しく、数百 Ω / \square 以下が好ましい。

30

【0236】発光層の材料は、電界印加時に陽極または 正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができ ると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を 注入することができる機能や、注入された電荷を移動さ せる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させ る機能を有する層を形成することができるものであれば 何でもよい。好ましくは発光層に本発明のオルトメタル 50

化金属錯体を含有するものであるが、他の発光材料を併 用して用いることもできる。例えばベンゾオキサゾー ル、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリル ベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テト ラフェニルプタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ペ リレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピ ラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラ セン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピ リジン、シクロペンタジエン、スチリルアミンおよびこ 10 れらの誘導体、芳香族ジメチリディン化合物、8-キノ リノールおよびその誘導体の金属錯体や希土類錯体に代 表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニ レン、ポリフェニレンビニレン、ポリチエニレンビニレ ン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は 特に限定されるものではないが、通常1nm ~ 5 μ mの 範囲のものが好ましく、より好ましくは $5nm\sim1\mu m$ であり、更に好ましくは10nm~500nmである。 発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、 抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層 20 法、コーティング法 (スピンコート法、キャスト法、デ イップコート法など)、LB法、インクジェット法、印 刷法、転写法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加 熱蒸着、コーティング法である。発光層は上述した材料 の1種または2種からなる単層構造であってもよいし、 同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であ ってもよい。

【0237】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極か ら正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から 注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているも のであればよい。その具体例としては、カルバゾール、 トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミ ダゾール、ポリアリールアルカン、ピラゾリン、ピラゾ ロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、アミノ置 換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒ ドラゾン、スチルベン、シラザンおよびこれらの誘導 体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合 物、芳香族ジメチリディン系化合物、ポルフィリン系化 合物、ポリシラン系化合物、ポリ (N-ビニルカルバゾ ール)およびその誘導体、アニリン系共重合体、チオフ エンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリ ゴマー、カーボン膜等が挙げられる。正孔注入層、正孔 輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常 1 nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは 5nm ~ 1 μ mであり、更に好ましくは10nm ~ 50 0 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料 の1種または2種以上からなる単層構造であってもよい し、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造 であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法と しては、真空蒸着法、LB法、インクジェット法、印刷 法、転写法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分

散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリブエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(Nービニルカルバゾール)、炭化水チルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0238】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極か ら電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から 注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているも のであればよい。その具体例としては、トリアゾール、 オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、アン トラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チ オピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデ ンメタン、ジスチリルピラジン、ナフタレンやペリレン 20 等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニンお よびこれらの誘導体、8-キノリノールおよびその誘導 体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾ ールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表 される各種金属錯体等が挙げられる。電子注入層、電子 輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 $nm\sim5\mu$ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは $5 \text{ nm} \sim 1 \mu \text{m}$ であり、更に好ましくは $10 \text{ nm} \sim 50$ 0 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料 の1種または2種以上からなる単層構造であってもよい 30 し、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造 であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法と しては、真空蒸着法、LB法、インクジェット法、印刷 法、転写法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分 散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャ スト法、ディップコート法など)などが用いられる。コ ーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散す ることができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送 層の場合に例示したものが適用できる。

【0239】保護層の材料としては水分や酸素等の素子 40 劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能 を有しているものであればよい。その具体例としては、 In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、N i等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、G eO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、

TiO₂等の金属酸化物、SiNx、SiNxOyなど の窒化物、MgF2、LiF、AlF3、CaF2等の金 属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチ ルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテト ラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレ ン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフル オロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合 体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノ マーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共 重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合 10 体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下 の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法につい ても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリン グ法、反応性スパッタリング法、MBE (分子線エピタ キシ) 法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーテ ィング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーテ ィング法)、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱 CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、イン クジェット法、印刷法、転写法を適用できる。

0 [0240]

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明 するが、本発明はこれにより限定されるものではない。 実施例 1

25mm×25mm×0.7mmのガラス基板上にIT 〇を150nmの厚さで製膜したもの(東京三容真空 (株) 製)を透明支持基板とした。この透明支持基板を エッチング、洗浄後、銅フタロシアニンを約10nm蒸 着した。次にTPD (N,N'-ビス (3-メチルフェニル) -N,N'-ジフェニルベンジジン) 約40nm、表1記載の 発光層 (ホスト材料と発光材料の質量比は、およそ9 4:6) を約20nm、バソクプロインを約6nm、A 1 q (トリス (8-ヒドロキシキノリナト) アルミニウ ム)約20nmを順に10⁻³~10⁻⁴Paの真空中で、 基板温度室温の条件下蒸着した。有機薄膜上にパターニ ングしたマスク (発光面積が5mm×4mmとなるマス ク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム:銀=10: 1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着し、 EL素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユ ニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印 加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については浜松ホトニクス社製スペク トルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その 結果を表1に示す。

[0241]

【表1】

_	-

泰子 No. 発光層ホスト材料				素子作製直後のE L 特付	85℃保存後EL特性		
	発光層発光材料	発光λ max (nm)	印加電圧 12V での辞度 (cd/m²)	外部量子効率	印加電圧 12V での輝度 (cd/m²)	発光面状*	
101(比較例)	СВР	K-1	513	36600	8. 1	11700	×
102(比較例)	CBP	. K-6	552	29800	6. 8	8500	×
103(本発明)	例示化合物61	K-1	613	38200	10. 2	31000	0
104(本発明)	例示化合物 6 1	K-6	554	30800	7. 3	28800	0
106(本発明)	例示化合物62	K-1	514	37400	9. 3	30600	0
106(本発明)	例示化合物62	K-6	553	31000	7. 6	29000	0
107(本発明)	例示化合物205	K-1	514	37000	9. Q	34400	0
108(本発明)	例示化合物205	K-2	488	27100	7. 0	24900	0
109(本発明)	例示化合物205	K-6	552	30800	7. 3	26800	0
110(本発明)	例示化合物246	K-1	513	38200	8. 6	32200	0
111(本発明)	例示化合物291	K-1	514	54000	14. 6	48000	0
112(本発明)	例示化合物291	K-6	553	42200	8. 3	39300	0
113(本発明)	例示化合物291	K-40	633	30500	7. 1	26200	0
114(本発明)	例示化合物297	K – 1	515	35900	8. 0	30700	0
115(本発明)	例示化合物297	K-6	555	29900	6. 9	26700	0

*O:ダークスポット(未発光部) 発生小、×:ダークスポット発生大

[0242]

【化128】

CBP

【0243】また、これらの素子をアルゴンガスで置換 したオートクレーブ中に封入し、85℃の加熱条件下3 日間保存した後に、同様の輝度測定・および発光面状観 察を行った結果も表1に示す。表1の結果から、文献化 30 合物であるCBPや本発明の化合物を用いた素子では、 外部量子効率5%以上と高い効率を示しているが、CB Pを用いた素子では高温保存した後に大幅な輝度低下お よびダークスポット (未発光部) の発生が多く見られる のに対し、本発明の化合物を用いた素子では、輝度の低 下も少なく、素子の発光面状も良好で、素子の保存耐久 性が大幅に向上していることがわかる。

*【0244】実施例2.実施例1と同様にエッチング、

20 洗浄した I T O ガラス基板上に、ポリ (N-ビニルカルバ ゾール (PVK)) 40 mg、2-(4-tert-ブチルフェ ニル) -5-(4-ビフェニルイル)-1,3,4-オキサジアゾール (PBD) 12mg、クマリン-6 1mgを1,2-ジク ロロエタン3m1に溶解した溶液をスピンコートした。 このときの有機層の膜厚は約120nmであった。次い で実施例1と同様に陰極を蒸着し、EL素子201を作 製した。素子201に対して、クマリン-6の代わりに 表2に示した化合物1mgを添加した以外は、201と 全く同じ組成のEL素子202~210を作製した。東 陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用い て、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度を トプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については 浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーРMA-1 1を用いて測定した。その結果を表2に示す。

[0245]

【表2】

表:

寮子 No. ホスト材料		発光材料		案子作製直後のE L特	85℃保存後EL特性		
	ホスト材料		発光 λ max (nm)	印加電圧 18V での輝度 (cd/m²)	外部量子効率 (%)	印加電圧 18V での輝度 (cd/m²)	発光面状*
201(比較例)	_	クマリンー6	5 2 7	2750	0. 7	5 2 0	×
202(比較何)	CBP	クマリンー6	5 2 6	2300	0. 6	3 4 0	×
203(本発明)	例示化合物 6 1	K-1	513	14800	3. 5	11700	0
204(本発明)	例示化合物 6 3	K-1	514	17200	3. 9	13400	0
205(本発明)	例示化合物63	K-41	568	12900	3. 0	9800	0
206(本発明)	例示化合物 6 5	K-1	513	16400	3. 7	12300	0
207(本発明)	例示化合物 152	K-1	5 1 2	15600	3. 6	11900	o
208(本発明)	例示化合物195	K-1	5 1 2	18100	3. 9	14100	0
209(本発明)	例示化合物236	K-1	513	16900	3. 6	13400	0
210(本発明)	例示化合物281	K-1	513	17500	4. 0	14000	0

*○:ダークスポット(未発光部)発生小、×:ダークスポット発生大

【0246】 【化129】

CBP

* [0247] (化130]

表 3

	発光層ホスト高分子	発光層 発光材料	素子作製直後のEL特性			85℃保存後EL特性	
秦子 No.			発光 l max (nm)	印加電圧 15V で の 輝 度 (cd/m²)	外部量子 効率 (%)	印加電圧 15V での輝度(cd/m²)	発光面状*
301(比較例)	ボ リヒ ニルカルハ ソール	K – 1	513	500	0.64	385	×
302(本発明)	例示化合物 1 6 9	K-1	514	8750	2.8	6950	0
303(本発明)	例示化合物172	K – 1	516	6900	3.2	4920	0
304(本発明)	例示化合物177	K – 1	516	18900	3.5	17500	0
305(本発明)	例示化合物177	K-2	488	14300	2.9	13200	0
306(本発明)	例示化合物177	K-40	633	8990	2.2	7600	0
307(本発明)	例示化合物285	K-1	513	19200	4.6	17650	0
308(本発明)	例示化合物285	K – 2	490	18750	3.2	16900	0
309(本発明)	例示化合物285	K-40	634	7880	2.8	6940	0
310(本発明)	例示化合物304	K-1	511	11150	3.3	9380	0
311(本発明)	例示化合物306	K – 1	514	17800	3.6	16900	0
812(本発明)	例示化合物306	K-2	489	14320	2.9	13000	0
313(本発明)	例示化合物306	K-40	631	6900	2.2	5800	0

*○:ダークスポット (未発光部) 発生小、×:ダークスポット発生大

【0248】表2の結果から明らかなように、本発明の素子では通常発光効率が低い塗布型素子においても高い発光輝度、発光効率を示し、また、保存耐久性に関して 30も優れていることがわかる。

【0249】実施例3.実施例1と同様にエッチング、洗浄したITOガラス基板上に、ポリエチレンジオキシチオフェンにポリスチレンスルホン酸をドープしたホール注入層を敷設した後、表3記載のホスト高分子材料を26mg、ビスカルバゾリルビフェニル(CBP)20mg、表3記載の発光材料1mgを1,2-ジクロロエタン3.1mlに溶解した溶液をスピンコートした。このときの有機層の膜厚は約120nmであった。次いで実施例1と同様に陰極を蒸着し、EL素子301~313を40作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果を表3に示す。

[0250]

【表3】

重量平均分子量 23,000 (ポリスチレン換算)

PBP

$$^{t}C_{4}H_{9} - \bigcirc \qquad \bigcirc \qquad \bigcirc \qquad \bigcirc \qquad \bigcirc$$

クマリン6

$$H_5C_2$$
 C_2H_5

【0251】表3の結果から明らかな様に、本発明の素子では通常発光効率が低い塗布型素子においても高い発光輝度、発光効率を示し、また、保存耐久性に関しても優れていることがわかる。

【0252】実施例4. ポリカーボネートフィルム上に SiOxNy(x=約0.7、y=約0.3)200n m、ITO200nmをこの順にスパッタした膜を基板 50 とし、この上にPTPDES/TBPA(Tris(4

-bromophenyl) aminium hexa chloroantimonate) (20mg/5m g) を1,2-ジクロロエタン2.5mlに溶解した溶 液を膜厚が約20 nmになるようにスピンコートした。 この上に化合物H-1約35nmを蒸着した後、例示化 合物265および例示化合物K-2を15:2の比率で 36 n m 共蒸着し、続いて例示化合物 377を18 n * *m、例示化合物291を18nm蒸着した。この有機薄 膜上にパターニングしたマスク (発光面積が2mm×2 mmとなるマスク)を装着し、LiFを1nm、Alを 200nm蒸着した。さらにプラズマCVDにより窒化 ケイ素を封止膜として付設して、発光素子を作成した。

[0253]

【化131】

PTPDES

【0254】この発光素子に、東陽テクニカ製ソースメ 30 た。 ジャーユニット2400を用いて、直流定電圧を印加 し、発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長とCIE色度座標を浜松ホトニクス社製ス ペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した結 果、最大発光波長484nm、色度座標(x,y)= (0.19,0.51)で、外部量子効率12%という 高い発光効率を得た。この素子は可撓性があり、フレキ シブルな発光素子で高効率が実現できる。

【0255】実施例5.洗浄したITO基板を蒸着装置 に入れ、TPDを50nm蒸着し、その上に例示化合物 40 75および化合物K-40を17:1の比率で30nm 共蒸着し、さらにこの上に例示化合物381および例示 化合物K-42を17:1の比率で2nm共蒸着し、さ らにこの上に例示化合物377を10nm、例示化合物 291を26nm蒸着した。この有機薄膜上にパターニ ングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマス ク)を装着し、フッ化リチウム2nmを蒸着した後、ア ルミニウムを400nm蒸着して、発光素子を作製し

【0256】この発光素子に、東陽テクニカ製ソースメ ジャーユニット2400を用いて、直流定電圧を印加 し、発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長とCIE色度座標を浜松ホトニクス社製ス ペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定したと ころ、色度座標(x,y)=(0.33,0.35)の 白色発光が得られ、最高輝度は59000cd/m²、 外部量子効率は13.7%であった。

【0257】本実施例の結果より、本発明の発光素子 は、従来低効率であった白色発光素子においても高効率 発光を得ることができ、また白色の色純度も非常に優れ た発光素子を作成することができる。

[0258]

【発明の効果】本発明の素子は高い発光輝度、発光効率 を示し、保存耐久性に関しては、高温保存した後に輝度 低下も少なく、かつ、発光面状も良好で、素子の保存耐 久性が大幅に改善される。また通常発光効率が低い塗布 型素子においても同様な効果が得られている。

【手続補正書】

【提出日】平成13年11月8日(2001.11. 8)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項5

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項5】 下記一般式(D)で表される繰り返し単 位を少なくとも1つ含む重合体。

【化2】

一般式(D)

校式(D)
$$\begin{array}{c}
\begin{pmatrix}
H \\
C \\
\end{pmatrix}
\\
(Ar^{D})_{n'}
\\
(R^{D1})_{n}^{D}
\end{array}$$
(R^{D2})m^D

(式中、Ar^Dはアリーレン基または二価のヘテロ環基 を表す。R^{D1}、R^{D2}は水素原子または置換基を表す。n [□]は0~3の整数を表し、m[□]は0~5の整数を表す。

m'は0または1を表す。)

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項6

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項6】 請求項1~3におけるヘテロ原子を2つ 以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

(D) で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重 合体であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに 記載の発光素子。

【化3】

一般式(D)

$$\begin{array}{c}
\begin{pmatrix}
H & H_2 \\
C & C
\end{pmatrix} \\
(Ar^D)_n'$$

$$(R^{D2})_m^D$$

(式中、Ar[®]はアリーレン基または二価のヘテロ環基 を表す。R^{D1}、R^{D2}は水素原子または置換基を表す。n [□]は0~3の整数を表し、m[□]は0~5の整数を表す。

m'は0または1を表す。)

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

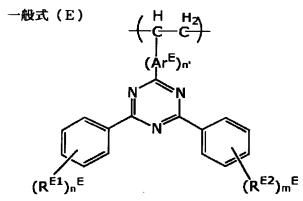
【補正対象項目名】請求項7

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項7】 下記一般式(E)で表される繰り返し単 位を少なくとも1つ含む重合体。

【化4】



(式中、Ar®はアリーレン基または二価のヘテロ環基 を表す。R^{E1}、R^{E2}は水素原子または置換基を表す。n 『およびm』は $0\sim5$ の整数を表す。n'は0または1を <u>表す。</u>)

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項8

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項8】 請求項1~3におけるヘテロ原子を2つ 以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重 合体であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに 記載の発光素子。

【化5】

(式中、 $Ar^{\rm g}$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{\rm g1}$ 、 $R^{\rm g2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^{\rm g}$ は $0 \sim 5$ の整数を表す。 $n^{\rm g}$ は $0 \approx 10$ または $1 \approx 10$ 表す。)

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正内容】

[0009]

【化7】

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正内容】

【0010】(式中、Ar^Dはアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。R^{D1}、R^{D2}は水素原子または置換基を表す。n^Dは0~3の整数を表し、m^Dは0~5の整数を表す。m² は0または1を表す。)

(6) (1) \sim (3) におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式 (D) で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする (1) \sim (3) のいずれかに記載の発光素子。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正内容】

[0011]

【化8】

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】変更

【補正内容】

【0012】(式中、 Ar^{D} はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 R^{D1} 、 R^{D2} は水素原子または置換基を表す。 n^{D} は0~3の整数を表し、 m^{D} は0~5の整数を表す。 m^{2} は0または1を表す。)

(7)下記一般式(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

【補正方法】変更

【補正内容】

[0013]

【化9】

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014

【補正方法】変更

【補正内容】

【0014】(式中、 Ar^{g} はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 R^{g1} 、 R^{g2} は水素原子または置換基を表す。 n^{g} および m^{g} は0~5の整数を表す。 n^{g} は0または1を表す。)

(8) (1) \sim (3) におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式(E) で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする(1) \sim (3) のいずれかに記載の発光素子。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0015

【補正方法】変更

【補正内容】

[0015]

【化10】

【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正内容】

【0016】(式中、 Ar^{g} はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 R^{g1} 、 R^{g2} は水素原子または置換基を表す。 n^{g} および m^{g} は0~5の整数を表す。 n^{g} は0または1を表す。)

(9) (3) におけるオルトメタル化錯体がイリジウム 錯体であることを特徴とする(4)、(6) または

(8) に記載の発光素子。

(10) 少なくとも発光層を含む有機化合物層が高分子 化合物を含有することを特徴とする(1)~(4)、

(6)、(8) および(9) のいずれかに記載の発光素 子。

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0247

【補正方法】変更

【補正内容】

[0247]

【化130】

PBP

クマリン6

$$H_5C_2$$
 C_2H_5

【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0250

【補正方法】変更

【補正内容】

[0250]

【表3】

表 3

			素子作製直後のEL特性			85℃保存後EL特性	
素子 No.	発光層ホスト高分子	発光層 発光材料	発光 λ max (nm)	印加電圧 15V で の 輝 度 (cd/m²)	外部量子 効率 (%)	印加電圧 15V での輝度(cd/m²)	発光面状*
301(比較例)	ボーリヒ"ニルカルハ"ソ"ール	K-1	513	500	0.64	385	×
302(本発明)	例示化合物 1 6 9	K-1	514	8750	2.8	6950	0
303(本発明)	例示化合物172	K-1	516	6900	3.2	4920	0
304(本発明)	例示化合物 1 7 7	K-1	516	18900	3.5	17500	0
305(本発明)	例示化合物 1 7 7	K – 2	488	14300	2.9	13200	0
306(本発明)	例示化合物 1 7 7	K-40	633	8990	2.2	7600	0
307(本発明)	例示化合物 2 8 5	K-1	513	19200	4.6	17650	0
308(本発明)	例示化合物 2 8 5	K – 2	490	18750	3.2	16900	0
309(本発明)	例示化合物285	K-40	634	7880	2.8	6940	0
310(本発明)	例示化合物 3 0 4	K-1	511	11150	3.3	9380	0
311(本発明)	例示化合物 3 0 6	K-1	514	17800	3.6	16900	0
312(本発明)	例示化合物306	K-2	489	14320	2.9	13000	0
313(本発明)	例示化合物306	K-40	631	6900	2.2	5800	0

*〇:ダークスポット (未発光部) 発生小、×:ダークスポット発生大

フロントページの続き

(51)Int.Cl.7

識別記号

FΙ

テーマコード(参考)

C 0 8 F 226:06)

(72)発明者 三島 雅之

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真

フイルム株式会社内

(72)発明者 田口 敏樹

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真

フイルム株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 EB00

4J100 AB07P AB07Q AQ26Q BA31P BC43P BC43Q BC73P BC73Q

BC75P CA01 CA04 DA01

DA61 JA32

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.